

A

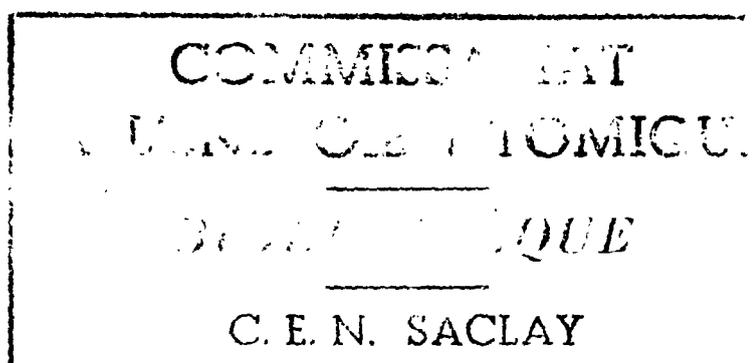
PREMIER MINISTRE
COMMISSARIAT A
L'ÉNERGIE ATOMIQUE

Application de la radioactivité à l'hydraulique souterraine

par

R. HOURS

Rapport CEA n° **2096**



CENTRE D'ÉTUDES
NUCLÉAIRES DE SACLAY

CEA 2096 - HOURS R.

Application de la radioactivité à l'hydraulique souterraine (1961).

Sommaire. — La recherche de traceurs radioactifs de l'eau susceptibles de circuler à travers les terrains perméables sans rétention notable a abouti à la sélection de deux isotopes, le brome 82 (période 36 heures) et l'iode (période 8 jours), tous deux émetteurs γ ; diverses combinaisons mettant en jeu des émetteurs γ de période plus longue ont été essayées, mais avec un succès partiel. Les progrès récemment accomplis dans le dosage du tritium doivent permettre une rapide extension de l'emploi de ce traceur unique en son genre.

Décelables à des concentrations de 10^{-6} à 10^{-8} curies par mètre cube, les traceurs radioactifs se prêtent à toutes les applications des traceurs classiques; de plus, des techniques originales ont été imaginées pour les mesures de débits, de capacité de réservoir, de porosité et de perméabilité.

En outre, des techniques basées sur l'absorption et la diffusion des rayons γ et des neutrons ont été développées pour la mesure de la densité, de l'humidité et de la porosité des terrains, ainsi que pour leur analyse.

C'est à l'étude des formations pétrolifères que la radioactivité a été jusqu'ici le plus appliquée. Par ailleurs, l'étude de la distribution du tritium d'origine naturelle ou thermonucléaire a fourni une importante contribution à la connaissance du cycle hydrologique.

CEA 2096 - HOURS R.

Application of radioactivity to subterranean hydraulic engineering (1961).

Summary. — The search for radioactive tracers for water capable of percolating through permeable grounds without significant absorption has led to the choosing of two isotopes, bromine 82 (half-life 36 hours) and iodine (half-life 8 days), both γ emitters; various combinations of other γ emitters with longer half-lives have been tried but with only partial success. The recent progress in the dosage of tritium should make it possible to widen the field of application of this tracer which is unique in its kind.

Being detectable at concentrations of 10^{-6} to 10^{-8} curies per cubic meter, the radioactive tracers are suitable for all the usual applications of conventional tracers; furthermore, some original techniques have been devised for measurements of flow, of reservoir capacity, of porosity and of permeability.

Techniques based on the absorption and scattering of γ -rays have also been developed for the measurement of the density, the humidity and the porosity of soils, and also for their analysis.

Up to the present, radioactivity has been mainly applied to the study of oil-bearing formations. Furthermore, the study of the distribution of natural or thermonuclear tritium has contributed greatly to the study of the hydrological cycle.

L'HYDRAULIQUE SOUTERRAINE

APPLICATION DE LA RADIOACTIVITÉ A L'HYDRAULIQUE SOUTERRAINE

RAPPORT GÉNÉRAL

General Report

PAR R. HOURS

ADJOINT AU CHEF DE LA SECTION DES APPLICATIONS DES RADIOÉLÉMENTS
COMMISSARIAT A L'ÉNERGIE ATOMIQUE
CENTRE D'ÉTUDES NUCLÉAIRES, SACLAY



Mémoire présenté aux

VI^e JOURNÉES DE L'HYDRAULIQUE

Nancy, 28-30 Juin 1960

PUBLIÉ PAR

LA HOUILLE BLANCHE

20, RUE GÉNÉRAL-RAMBAUD — GRENOBLE (ISÈRE)

APPLICATION DE LA RADIOACTIVITÉ A L'HYDRAULIQUE SOUTERRAINE

RAPPORT GÉNÉRAL

General Report

PAR R. HOURS

ADJOINT AU CHEF DE LA SECTION DES APPLICATIONS DES RADIOÉLÉMENTS
COMMISSARIAT A L'ÉNERGIE ATOMIQUE
CENTRE D'ÉTUDES NUCLÉAIRES, SACLAY*See English summary page 636*

La recherche de traceurs radioactifs de l'eau susceptibles de circuler à travers les terrains perméables sans rétention notable a abouti à la sélection de deux isotopes, le brome 82 (période 36 heures) et l'iode 131 (période 8 jours), tous deux émetteurs γ ; diverses combinaisons mettant en jeu des émetteurs γ de période plus longue ont été essayées, mais avec un succès partiel. Les progrès récemment accomplis dans le dosage du tritium doivent permettre une rapide extension de l'emploi de ce traceur unique en son genre.

Décelables à des concentrations de 10^{-6} à 10^{-8} curie par mètre cube, les traceurs radioactifs se prêtent à toutes les applications des traceurs classiques; de plus, des techniques originales ont été imaginées pour les mesures de débits, de capacité de réservoir, de porosité et de perméabilité.

En outre, des techniques basées sur l'absorption et la diffusion des rayons γ et des neutrons ont été développées pour la mesure de la densité, de l'humidité et de la porosité des terrains, ainsi que pour leur analyse.

C'est à l'étude des formations pétrolifères que la radioactivité a été jusqu'ici le plus appliquée. Par ailleurs, l'étude de la distribution du tritium d'origine naturelle ou thermonucléaire a fourni une importante contribution à la connaissance du cycle hydrologique.

INTRODUCTION

C'est principalement en fournissant à l'hydrologue de nouveaux traceurs de l'eau que la radioactivité a apporté à l'étude des écoulements souterrains une contribution appréciable.

En mars 1955, nous présentions au comité technique de la Société Hydrotechnique de France un mémoire [1] relatant les recherches effectuées en France, qui avaient abouti à la sélection de deux traceurs radioactifs, le brome 82, émetteur γ dur de période trente-six heures, et l'iode 131, émetteur γ mou de période huit jours, utilisés sous leur forme anionique et laissant prévoir l'avenir important réservé au tritium dont l'emploi avait été jusque-là retardé par la difficulté de son dosage. Nous insistions aussi sur

la nécessité de poursuivre les recherches en vue de sélectionner des traceurs émetteurs γ de période plus longue, quelques semaines ou quelques mois.

Depuis cette date, de nombreux travaux relatifs à la recherche de traceurs radioactifs salins émetteurs γ et à leurs applications ont été publiés en Israël [2] [3], aux Etats-Unis [4] [5] [6] [7] [8], en Suède [9] [9 bis], en Angleterre [10], en Allemagne et en Australie [11] [12]. Quant à l'emploi du tritium d'origine naturelle ou artificielle, il a fait l'effet d'une floraison de publications que nous examinerons plus loin. Une revue générale du problème des traceurs a été publiée en 1959 par Schoeller [13].

Par ailleurs, les jauges de densité et d'humidité basées sur l'interaction des rayons γ et des neutrons avec le sol ont trouvé un vaste champ d'application dans l'étude des terrains perméables et spécialement des formations pétrolifères.

Dans la présente communication, nous tenterons de faire le point de la question sans entrer dans trop de détails, pour lesquels nous renvoyons le lecteur aux mémoires originaux cités en référence.

I. — LES TRACEURS RADIOACTIFS SALINS DE L'EAU

A l'exception du tritium, un traceur radioactif de l'eau est une substance chimique soluble dans la molécule de laquelle un atome est radioactif; la concentration de ce traceur peut être mesurée directement *in situ* au moyen d'une sonde s'il s'agit d'un émetteur γ ou β dur, mais des prélèvements sont nécessaires dans le cas d'un émetteur β mou.

A) Qualités d'un traceur salin.

Les qualités d'un traceur idéal ont été décrites par différents auteurs [1] [2] [3] [4] [5] [13] : large domaine de solubilité, émission γ détectable *in situ*, période convenable (de l'ordre de grandeur de la durée de l'expérience), toxicité chimique ou radioactive minimum; mais la qualité essentielle est sans doute de refléter fidèlement le mouvement de l'eau, ce qui implique l'absence de toute interaction chimique du traceur, adsorption, échange, précipitation, etc., avec un élément du milieu pouvant entraîner son retard ou sa disparition partielle ou totale. Malheureusement, aucun traceur salin ne possède cette dernière qualité en totalité et pour tous les terrains.

B) Sélection des traceurs salins radioactifs.

Une première sélection, rapide et facile, est basée sur des considérations de période, de rayonnement, de disponibilité et de prix de revient. Vient ensuite l'étude expérimentale de la rétention par le terrain du traceur à différentes concentrations. La rétention est caractéristique de l'élément marqué et de sa forme chimique (ion, molécule, complexe) mais ne dépend pas en général de façon appréciable de son état isotopique (effet isotopique négligeable). La rétention a été étudiée par les trois méthodes suivantes :

1° Percolation à travers une colonne de terrain de la solution, injectée de façon brusque (bouffée) ou continue. La forme de la courbe de sortie du traceur (break through curve) et sa surface renseignent sur le comportement du traceur. Cette méthode est relativement longue.

2° En mesurant l'équilibre de concentration qui s'établit entre un volume donné de solution et une masse donnée de terrain mis en contact intime, on peut construire point par point l'isotherme d'adsorption. Cette méthode « statique » est rapide, mais ne peut remplacer complètement la précédente.

3° Une méthode originale, développée en Israël sous le nom de « single well pulse technique » [2] [3], consiste à injecter dans un forage une bouffée de traceur, suivie d'un volume connu d'eau; après un séjour déterminé dans la formation, l'eau est pompée en retour et son activité enregistrée. Cette méthode, qui renseigne à la fois sur la formation et sur la rétention du traceur, vient compléter les deux méthodes précédentes.

Ces méthodes nous ont permis de sélectionner les deux anions bromure et iodure cités plus haut, capables de traverser une colonne de 1 m de hauteur de sable argileux à des concentrations de quelques p.p.b. (microgrammes par litre) sans rétention notable, alors que des concentrations de plusieurs dizaines de p.p.m. (milligrammes par litre) étaient nécessaires avec la fluorescéine pour obtenir le même résultat. Le chlore, considéré par certains comme voisin du traceur idéal en raison d'une sorte d'adsorption négative, ne possède pas d'isotope radioactif de période convenable. Le phosphore (émetteur β dur), n'a pas donné satisfaction. Les recherches d'émetteurs γ de période supérieure à celle de l'iode 131 (huit jours) se sont alors orientées vers les cations.

La plupart des cations sont fixés par les terrains qui sont en général des colloïdes négatifs; cependant, le sodium 24 (émetteur γ dur de période quinze heures) et le rubidium 86 (émetteur γ dur de période dix-neuf jours) ont été quelquefois utilisés avec succès, bien que ce dernier soit fortement fixé par les matériaux argileux. Différentes tentatives ont été effectuées pour convertir des cations radioactifs en une forme anionique ou non ionique. A cette fin, on peut englober le métal dans un ion complexe anionique ou le chélater, c'est-à-dire l'encager entre plusieurs atomes; ou enfin le fixer dans une molécule organique non polaire. Les premiers, Lacy

et de Laguna [14], en chélatant au moyen de versémate (EDTA) (*) le cobalt 60 (période 5,3 ans), l'antimoine 124 (période soixante jours) et le chrome 51 (période vingt-six jours), tous trois émetteurs γ , ont réussi à en faciliter la circulation à travers les colonnes de terre adsorbantes.

Cependant, Villermaux [15], essayant de reproduire sur différents terrains les expériences de ces auteurs, en étudiant l'équilibre développé entre un échangeur d'ions et les formes ioniques et chélatées de ces trois éléments, arriva à la conclusion que la chélation ne peut supprimer convenablement l'adsorption qu'à condition de maintenir une forte concentration de versémate et un pH bien déterminé, ce qui est réalisable en laboratoire, mais pas dans un système naturel. Villermaux ne put obtenir de résultats vraiment satisfaisants ni avec les chélates formés par action de l'acétylacétone sur le scandium 46, le chrome 51 ou le cobalt 60, ni avec l'ion cobaltocyanure, complexe anionique très stable. Remarquant que les eaux naturelles contiennent souvent de la silice colloïdale (sols de silice) dont la circulation aisée à travers les terrains est de ce fait démontrée, il suggéra l'emploi de cations adsorbés sur de tels sols convenablement stabilisés, mais cette idée n'a pas été jusqu'ici sérieusement exploitée.

En Israël, Halévy et Nir [3] [4] essayèrent différents traceurs émetteurs γ , spécialement $^{65}\text{Zn-EDTA}$, $^{102}\text{Ir-EDTA}$, $^{60}\text{Co-EDTA}$, ainsi que des cobaltocyanures, à la fois sur colonnes de terre et par la « single well method ». Ces auteurs conclurent que l'ion $\text{Co}(\text{CN})_3^-$ semble le meilleur traceur pour les formations calcaires, que l'iridium-EDTA était trop absorbé et que Zn-EDTA et Co-EDTA étaient comparables à l'iode 131. Nous pensons toutefois que ces essais n'ont pas toujours été effectués dans des conditions d'absorption assez dures : granulométrie grossière, concentrations relativement élevées (ordre de 100 p.p.m.) et débits élevés ne favorisant pas l'adsorption; dans ces conditions, beaucoup de traceurs semblent bons alors qu'ils ne le seraient pas dans des conditions plus rigoureuses (concentrations de l'ordre du p.p.b. notamment).

Des études analogues ont été entreprises aux Etats-Unis par Watkins et alt. [5] [6], en recyclant le traceur, dissous dans une saumure à 50 g/l de ClNa , à travers une carotte de grès. Ces auteurs comparent $^{86}\text{Rb Cl}$, HTO, ^{131}IK , ainsi que ^{102}Ir , ^{51}Cr , ^{124}Sb , ^{114}In , ^{60}Co , ^{144}Ce chélatés par l'EDTA, à des concentrations variant de 0,1 p.p.b. à 1 p.p.m. suivant le traceur utilisé. Ils conclurent que le $^{86}\text{Rb Cl}$ et $^{124}\text{Sb-EDTA}$ pourraient, dans certains cas, entrer en compétition

avec $^{131}\text{I-}$ ou l'eau tritiée. Mais en raison de l'emploi d'une saumure concentrée, d'un seul type de terrain et de concentrations très variables suivant le traceur essayé, il est difficile de comparer certains traceurs entre eux et d'extrapoler les résultats à des eaux douces et à des terres argileuses.

Il apparaît ainsi que bien que des recherches fragmentaires aient été effectuées pour sélectionner des émetteurs γ de périodes supérieures à celle de l'iode 131, aucune étude générale n'a été encore entreprise pour trouver de tels traceurs convenant à tous les types de sols, spécialement les sols argileux; de plus, les méthodes utilisées et les résultats obtenus jusqu'ici sont souvent difficilement comparables. C'est pourquoi, alors que dans certains terrains favorables de nombreux traceurs, radioactifs ou non, peuvent convenir, dans les aquifères, par contre, où les terrains argileux sont abondants, le choix d'émetteurs γ de vie relativement longue reste quelque peu hasardeux et serait facilité par des études complémentaires hautement désirables.

Il faut remarquer que les pertes par absorption sont toujours diminuées si l'on augmente la concentration du traceur, ce qui signifie qu'il faut additionner le traceur radioactif proprement dit d'une quantité suffisante de la même substance inactive, l'entraîneur; le traceur radioactif lui-même se trouve toujours en quantité très faible, puisque 1 curie de ^{131}I pèse 8 μg , 1 curie de ^{82}Br 0,9 μg . Le coût élevé de cet entraîneur inactif peut parfois prohiber l'emploi d'un traceur déterminé, à moins que ce dernier ne puisse être « entraîné » par une substance chimique voisine mais peu coûteuse. La présence naturelle d'entraîneur dans l'eau favorise la circulation du traceur radioactif sans en gêner la détection, comme ce serait le cas pour un traceur classique.

C) Détection des traceurs salins radioactifs.

Par l'emploi d'une sonde à scintillation, un émetteur γ dissous dans l'eau peut être décelé directement *in situ* à des concentrations extrêmement faibles, atteignant 1 $\mu\text{c}/\text{m}^3$ pour l'iode 131 et 0,1 $\mu\text{c}/\text{m}^3$ pour le brome 82 dans le cas le plus favorable.

Plus précisément, nous admettrons que l'erreur sur la mesure de la concentration est due essentiellement aux fluctuations statistiques du comptage dont l'écart standard est donné par la formule :

$$\frac{\sigma n_s}{n_s} = \frac{1}{n_s} \sqrt{\frac{n_s + n_b}{t_s} + \frac{n_b}{t_b}} \quad (1)$$

(*) Ethylène-diamine-tétra-acétate.

où :

n_s = taux de comptage net de l'échantillon en chocs par minute (cpm);

n_b = taux de comptage du bruit de fond en chocs par minute;

t_s = temps de comptage de l'échantillon, en mn;

t_b = temps de comptage du bruit de fond, en mn.

En général, dans le cas des très faibles concentrations $n_s \ll n_b$ et si nous supposons $t_s = t_b = t$, nous arrivons à la formule simplifiée approchée :

$$\frac{\sigma n_s}{n_s} = \frac{1}{n_s} \sqrt{\frac{2 n_b}{t}} \quad (2)$$

Dans le cas du comptage à l'échelle, on totalise les impulsions enregistrées pendant le temps t dont on est maître; dans le cas d'un intégrateur, donnant directement sur un cadran, le taux de comptage en chocs par minute, le temps t à introduire dans la formule (2) est égal à deux fois la constante de temps $\tau = RC$ du système intégrateur; τ est en général inférieur à une minute.

Nous définirons deux critères de sensibilité :

1° Concentration minimum détectable (C.M.D.) correspondant à $\sigma n_s/n_s = 0,5$:

$$\text{C.M.D. } (\mu\text{c}/\text{m}^3) = \frac{2,8}{F} \sqrt{\frac{n_b}{t}} \quad (3)$$

où F est le taux de comptage, n_s correspondant à une concentration de $1 \mu\text{c}/\text{m}^3$.

2° Concentration minimum mesurable (C.M.M.), correspondant à $\sigma n_s/n_s = 0,1$:

$$\text{C.M.M. } (\mu\text{c}/\text{m}^3) = \frac{14}{F} \sqrt{\frac{n_b}{t}} = 5 \text{ C.M.D.} \quad (4)$$

Une discussion détaillée de la signification et de la validité de ces critères est donnée par Hours et Kaufman [16].

Ljunggren [9] et Ellis [11] donnent les valeurs suivantes pour une sonde portative à scintillation équipée d'un cristal d'iodure de sodium de $1\frac{1}{2} \times 1$ pouce, plongée dans une solution de volume « infini » (sphère de plusieurs décimètres de rayon, correspondant à plusieurs livres parcourus des photons γ dans l'eau) :

brome 82 $F = 500$ cpm

iode 131 $F = 80$ cpm

Le bruit de fond n_b , qui est de l'ordre de 1 500 cpm sur le sol, peut descendre à 50 cpm si le cristal est immergé à 1 m de profondeur.

Utilisant cette dernière valeur pour n_b et les valeurs précédentes pour F , les sensibilités correspondantes sont données dans le tableau ci-dessous :

t mn	C.M.D. ($\mu\text{c}/\text{m}^3$)		C.M.M. ($\mu\text{c}/\text{m}^3$)	
	^{82}Br	^{131}I	^{82}Br	^{131}I
1/3	0,067	0,43	0,335	2,15
5	0,018	0,11	0,089	0,55
30	0,007	0,046	0,036	0,23

Le temps $t = 1/3$ mn correspond à la constante de temps $RC = 10$ s courante des scintillomètres portatifs.

Les valeurs données dans le tableau ci-dessus doivent être considérées comme optimales, les conditions géométriques correspondant aux valeurs utilisées pour F et n_b étant particulièrement favorables ou susceptibles d'être rencontrées plutôt dans un lac ou une rivière que dans un puits ou un forage.

L'emploi de sondes munies de compteurs Geiger conduit à des sensibilités en général notablement inférieures.

Un procédé de mesure plus long, mais plusieurs fois plus sensible, consiste à prélever des échantillons d'eau, puis à les concentrer ou en extraire chimiquement le traceur qui est placé ensuite au voisinage du détecteur. Ce procédé a été utilisé à Cauterets [1] [17] où l'iode 131, extrait d'échantillons de 1 à 10 litres, était placé sous la fenêtre d'un compteur-cloche; une C.M.D. de 10^{-2} à $10^{-3} \mu\text{c}/\text{m}^3$ était ainsi obtenue en une demi-heure de comptage.

Notons, à titre de comparaison, que la sensibilité du dosage colorimétrique du bichromate de sodium, tel qu'il est pratiqué dans la méthode de dilution, correspond à une C.M.M. de $20 \text{ mg}/\text{m}^3$ [17 bis] [17 ter].

II. — LE TRITIUM

Le tritium T, isotope de masse 3 de l'hydrogène, est un émetteur β très mou (18 KeV) de période 12,4 ans. C'est le seul véritable traceur radioactif de l'eau, ou plutôt d'un élément présent dans la molécule d'eau; de ce fait, l'entraîneur inactif H est naturellement présent en quantité

illimitée. Bien que Kaufman et Orlob [4] aient montré que l'eau tritiée peut s'échanger avec une fraction de l'eau chimiquement associée aux minéraux argileux, ceci signifie simplement que le tritium « voit » plus complètement que les traceurs chimiques l'eau présente dans le sol;

en fait, l'échange inverse se produit rapidement, en sorte qu'il est peu probable que la vitesse de circulation du tritium soit inférieure de plus de quelques pour-cent à celle d'un traceur chimique non échangé comme le chlore, même dans une formation très argileuse; dans la plupart des terrains, la différence sera insignifiante.

Le dosage du tritium ne peut s'effectuer *in situ* et nécessite donc la prise d'échantillons.

La scintillation liquide fournit le moyen de dosage le plus simple, puisque l'eau est simplement mélangée à un scintillateur liquide. A partir d'échantillons de 40 cc, Hours et Kaufman [16] ont pu, avec un appareil commercial Tricarb (Packard Inst. Co.) légèrement modifié, porter à $0,5 \mu\text{c}/\text{m}^3$ la C.M.D. et à $2,5 \mu\text{c}/\text{m}^3$ la C.M.M. en une demi-heure de comptage.

Une autre technique de mesure consiste à convertir l'eau tritiée en un gaz hydrogéné, puis à l'introduire dans un compteur de Geiger. Ostlund, en Suède, a obtenu par ce moyen une C.M.D. de $0,3 \mu\text{c}/\text{m}^3$ en une demi-heure de comptage, à partir d'échantillons de 1 cc.

Les sensibilités des deux procédés sont donc comparables, mais le second est de mise en œuvre plus longue et plus délicate; d'autre part,

l'appareil d'Ostlund pèse 10 tonnes, tandis que le Tricarb ne pèse que 200 kg et pourrait être installé dans un camion laboratoire. Il existe d'ailleurs des appareils des deux types plus légers, mais moins sensibles.

Ces sensibilités, suffisantes pour la recherche d'eau tritiée volontairement injectée, ne le sont en général pas pour la recherche du tritium naturel, dont la concentration est de quelques unités tritium seulement; une unité tritium (U.T.) correspond à un rapport T/H de 10^{-18} , ou à $3,2 \cdot 10^{-3} \mu\text{c}/\text{m}^3$.

Pour augmenter la sensibilité, on s'adresse en général à la concentration électrolytique, le tritium s'accumulant dans la phase liquide. Un enrichissement de 10 peut être obtenu en vingt-quatre heures à la suite d'une concentration volumétrique de l'ordre de 20; mais les enrichissements de plusieurs centaines ou milliers nécessaires au dosage du tritium naturel exigent des concentrations volumétriques du même ordre et demandent plusieurs jours ou semaines. Le compteur à gaz, dans lequel on n'introduit que l'équivalent de 1 cc d'eau au lieu de 40, permettra dans ce dernier cas de limiter le volume des prélèvements à 1 ou 2 litres.

III. — MODALITÉS D'EMPLOI DES TRACEURS RADIOACTIFS

Toutes les applications des traceurs classiques peuvent être reprises avec les traceurs radioactifs; soit par ordre de complexité croissante :

- 1° prouver l'existence d'une interconnexion entre deux aquifères;
- 2° évaluer le temps de transit entre deux points;
- 3° estimer l'extension de l'aquifère et ses caractéristiques hydrologiques.

Dans chaque cas, le choix du traceur, de son activité, de la quantité d'entraîneur devra faire l'objet d'une étude préalable qui nécessitera l'estimation des temps de transit et des facteurs de dilution; ces problèmes ont été considérés par divers auteurs [1] [2] [3] [13]; Halévy et Nir [2] ont spécialement étudié la prévision de la forme de l'onde de sortie. D'autres considérations seront développées plus loin à propos de la comparaison des traceurs classiques et radioactifs. Nous insisterons cependant immédiatement sur les **Considérations de Sécurité**.

La protection des opérateurs contre le rayonnement des émetteurs γ complique leur manipulation mais ne pose pas de problème insurmontable. Plus délicat est le problème de la contamination des eaux de boisson. On devra faire

en sorte que la concentration du traceur aux points de consommation soit inférieure aux concentrations maximales autorisées pour la fraction non surveillée de la population, fixées actuellement [18] à $20 \text{ mc}/\text{m}^3$ pour le tritium, $6 \mu\text{c}/\text{m}^3$ pour l'iode 131, $9 \mu\text{c}/\text{m}^3$ pour le brome 82. Ces chiffres, révisés régulièrement dans le sens d'une sévérité croissante, se rapprochent parfois des limites de sensibilités des appareils de détection; ils pourront être maniés avec une certaine souplesse dans le cas d'essais de courte durée. On trouvera des considérations plus détaillées dans [3] et [16] [16 bis].

Examinons maintenant l'application des traceurs radioactifs à quelques problèmes généraux.

A) Evaluation du temps de transit entre deux points

On pourra injecter une bouffée de traceur en un point et relever la concentration en fonction du temps à l'autre point.

Une autre méthode, propre celle-là aux traceurs radioactifs, est le datage de l'eau qui sup-

pose une injection continue du traceur dans la nappe. Dans la mesure où entre deux points 1 et 2 situés à l'aval de la zone d'injection, il n'y a ni apport d'eau non marquée, ni fixation du traceur par le terrain, la diminution de l'activité spécifique C de l'eau est due à la seule décroissance radioactive et le temps t de transit entre 1 et 2 est lié à la période T du traceur par la relation :

$$C_2/C_1 = 2^{-t/T} \quad (5)$$

Cette méthode, qui suppose t pas trop petit devant T , a surtout été appliquée dans le cas du tritium naturel (voir plus loin), mais pourrait être utilisée dans le cas de traceurs de vie plus courte.

B) Mesure directe du débit

Nous rappellerons le principe des méthodes de dilution et d'intégration appliquées à la mesure du débit des cours d'eau ou des conduites, en laissant aux hydrauliciens le soin d'apprécier dans quelle mesure elles sont applicables aux écoulements souterrains.

1° MÉTHODE DE DILUTION, OU MÉTHODE CHIMIQUE :

Le traceur est injecté de façon continue à une concentration C sous un débit q ; assez loin en aval pour qu'une concentration c stationnaire et uniforme dans toute une section ait été établie, le débit Q est donné par :

$$Q = q C/c \quad (6)$$

c peut être mesurée soit directement, soit par prélèvement. Le débit de traceur à injecter, calculé d'après l'équation (1), est donné par :

$$qC (\mu C/mn) = Q \frac{\overline{100}^2 + 100 \sqrt{\overline{100}^2 + 8 p^2 n_b t}}{2 p^2 F t} \quad (7)$$

les unités étant le μc , le m^3 et la minute; p désignant l'écart standard relatif en pour-cent désiré sur la mesure de c ; t désignant le temps de comptage. Dans le cas d'un intégrateur,

$$t = 2 \tau = 2 RC.$$

Aucune perte de traceur ne pouvant être tolérée, le brome 82, l'iode 131 et le tritium pourraient être utilisés.

2° MÉTHODE D'INTÉGRATION, OU DU COMPTAGE TOTAL (Hull) :

Une masse M de traceur est injectée en un temps de préférence bref; suffisamment loin en aval pour assurer un bon mélange, ce qui signifie que dans un tube de courant de débit dQ , la quantité totale de traceur transporté est :

$$dM = M dQ/Q \quad (8)$$

La concentration locale c est enregistrée; on a :

$$dM = dQ \int c dt, \text{ d'où } dQ = dM / \int c dt \quad (9)$$

Dans le cas d'un traceur radioactif, cette méthode, développée par Hull [19] [20] sous le nom de « méthode du comptage total », est particulièrement simple; si A est l'activité injectée (en μc), c la concentration ($\mu c/m^3$), n_s le taux net de comptage (cpm) d'un compteur immergé, on a :

$$Q = \frac{A}{\int c dt} = \frac{A}{\int (n_s/F) dt} = \frac{AF}{\int n_s dt} = \frac{AF}{N} \quad (10)$$

N représentant le nombre de coups nets totalisés par une échelle de comptage pendant tout le passage du nuage radioactif.

Pour un écart standard $p\%$ sur la mesure de N , il faut injecter :

$$A (\mu c) = \frac{Q}{F} \frac{\overline{100}^2 + 100 \sqrt{\overline{100}^2 + 8 n_b p^2 t}}{2 p^2}$$

t représentant le temps total du comptage, qui doit être au moins égal à celui du passage du nuage radioactif.

Hull a mesuré ainsi, en des temps variant de 20 à 60 mn, des débits de cours d'eau variant de 15 à 45 m^3/s , ou moyen de compteurs Geiger et de quelques centaines de mc d'or 198 (émetteur γ mou de période 2,7 jours) sous forme de chlorure ou de solution colloïdale; le coefficient F pour cet isotope est pratiquement le même que pour l'iode 131. Dans le cas d'écoulements souterrains, le brome 82 ou l'iode 131 seraient sans doute préférables à l'or 198 qui ne présente pas toujours toutes garanties vis-à-vis de l'adsorption.

Dans le cas du tritium, il faudrait opérer comme avec un traceur chimique, c'est-à-dire soit effectuer régulièrement des prélèvements et calculer $\Sigma C_i \Delta t_i$, soit effectuer un prélèvement continu pendant t et mesurer la concentration moyenne $\bar{C} = \int_0^t c dt / t$.

La théorie, et surtout l'expérience, permettent dans chaque cas d'évaluer t ainsi que la distance en aval du point d'injection à partir de laquelle la condition de bon mélange est satisfaite; pour les débits de 15 à 45 m^3/s mesurés par Hull, cette distance était de 500 à 750 mètres.

3° MÉTHODE DU TUBE FILTRANT (Moser) :

Cette méthode s'applique aux écoulements lents de nappes souterraines. Un tube filtrant enfoncé dans la formation est rempli d'une solution radioactive dont on mesure la diminution de concentration en fonction du temps, diminution théoriquement exponentielle. Moser [21] a vérifié sur le terrain la validité de cette mé-

thode avec quelques mc d'iode 131 pour des vitesses d'écoulement de quelques m par jour; la loi réelle de variation de l'activité en fonction du temps avait été préalablement déterminée au laboratoire. L'emploi de très faibles concentrations est ici essentiel pour éviter les courants de densité.

C) Mesure de la capacité d'un réservoir d'eau souterraine

L'eau souterraine d'une aire collectrice déterminée est marquée uniformément au moyen d'eau tritiée injectée par un réseau de forages à une profondeur suffisante pour éviter la réévaporation par les plantes. A partir de la courbe reliant la concentration du tritium dans le cours d'eau drainant l'aire considérée au débit de ce dernier, on peut estimer la quantité d'eau emmagasinée et son taux de renouvellement. Les quantités de tritium à utiliser seraient de quelques $\mu\text{c}/\text{m}^3$, soit quelques dizaines de curies par km^2 pour une épaisseur d'eau d'une dizaine de mètres. Eriksson [22], qui propose cette méthode, a montré que le marquage uniforme d'une couche superficielle de la nappe seulement pourrait donner une valeur minimum de la capacité du réservoir, car le mélange des différentes couches dans la rivière de drainage conduit à une concentration moyenne voisine de celle que donnerait un marquage uniforme en profondeur de la nappe.

D) Mesure de perméabilité et de porosité

La technique des traceurs radioactifs dans ce domaine a surtout été développée pour la prospection et l'extraction du pétrole [6] [7] [23].

Après injection contrôlée, suivie éventuellement de pompages, d'une solution radioactive dans un forage, les relevés du profil d'activité permettront de localiser les zones perméables et d'en estimer dans une certaine mesure la perméabilité et la porosité; un traceur aisément fixé par le terrain peut dans ce cas être préférable; on a aussi utilisé dans ce but des suspensions d'argiles ou de perles plastiques radioactives, de charbon actif saturé de radon ou de verre radioactif en poudre.

E) Etude de cimentation

Le contrôle des niveaux de cimentation dans les puits de pétrole a été effectué en mélangeant au ciment un minéral radioactif, la carnotite [24]. Actuellement, on préfère marquer le ciment avec un isotope de vie plus courte.

En France [25], le contrôle de la consolidation des terrains meubles par injection de ciment dans un rideau de puits parallèles a été effectué en marquant le ciment au moyen du scandium 46 (émetteur γ dur de 85 jours de période) à la teneur de 200 μc pour 50 litres de coulis: le marquage s'effectue sur le chantier en versant dans une bétonnière quelques cc d'une solution de chlorure de scandium qui se fixe très solidement au ciment et à l'argile. Le relevé de l'activité dans les puits adjacents au puits d'injection, au moyen d'une sonde Geiger, permet de contrôler l'extension du ciment marqué.

IV. — EXEMPLES D'APPLICATIONS PRATIQUES DES TRACEURS RADIOACTIFS

Les expériences publiées ne sont pas très nombreuses. La première application importante est rapportée par Fox [26] qui utilisa avec succès une centaine de mc de $^{86}\text{RbCl}$ pour vérifier l'existence d'une perte d'eau soupçonnée dans le site d'une retenue en cours d'étude, au voisinage du Nil; le traceur fut retrouvé cinq jours après l'injection, après avoir effectué un parcours souterrain de 11 km; la présence de chlorure de sodium avait sans doute facilité la circulation du traceur dans un terrain peu absorbant.

En 1952, sur le site du futur barrage de Serre-Ponçon [1] en France, l'injection de un curie de ^{82}Br entraîné par 5 kg de BrNa , a permis d'établir l'existence d'une liaison à travers les alluvions de la Durance entre deux points dis-

tants d'une centaine de mètres; le traceur réapparut au bout de vingt-quatre heures dans le puits de pompage, alors que des quantités importantes de fluorescéine n'avaient jamais réapparu.

En France, également, une expérience fut organisée en 1953 par Urbain [1] [17] pour savoir si les sources thermales de Cauterets n'étaient pas en partie alimentées par l'eau d'un lac situé à 1400 m plus haut; 1 curie d'iode 131, additionné de 4 kg d'I₂ entraîneur, fut injecté dans le lac; aucune trace d'activité n'ayant apparu dans les sources au bout de deux mois, les recherches furent abandonnées. Le parcours souterrain étant de 20 km, il est possible que le traceur ait été fixé par le sol

ou soit réapparu après plus de deux mois, alors que la décroissance de l'iode n'en permettait plus la détection. Cette expérience pourrait être reprise avec du tritium injecté; ou même par dosage du tritium naturel (voir plus loin).

En Angleterre, l'emploi du sodium 24 permit d'attribuer à un lac des inondations survenues dans une mine.

En Israël [2] [3] divers essais ont été effectués sur le terrain, notamment par la « single well pulse technique », dans le but de comparer les résultats obtenus au moyen de divers traceurs radioactifs et par d'autres méthodes; dans un essai rapporté par Halévy [3] effectué entre deux points distants de 50 m, les résultats obtenus avec l'iode 131 concordaient de façon satisfaisante avec ceux obtenus par des méthodes purement hydrauliques.

Les essais de Moser [21], en Allemagne, ont été mentionnés plus haut (III B 3).

Aux Etats-Unis, de nombreuses études relatives au mouvement des ions dans les milieux poreux naturels ont été effectuées à l'occasion du problème du rejet des effluents radioactifs dans le sol et ont montré que la plupart des ions sont facilement fixés par le sol. Mais nous n'avons pas connaissance d'expériences où le but était de tracer l'eau elle-même, si l'on excepte l'étude du suintement d'un canal au moyen de tritium [27] et les nombreuses applications à l'exploitation des puits de pétrole [6] [7] [23]. Dans ce domaine, l'application la plus fré-

quente est l'emploi de l'iode 131 pour suivre l'eau injectée en vue de la récupération secondaire du pétrole (water-flooding); l'injection simultanée d'émetteurs d'énergie γ différente (^{131}I , ^{102}Ir) dans plusieurs puits a permis de connaître les liaisons hydrauliques dans un réseau de puits; les mesures de porosité et de perméabilité et la recherche des fissurations ont été mentionnées plus haut (III D).

En U.R.S.S., des injections de quelques curies d'eau tritiée ont permis d'étudier le circuit de l'eau souterraine dans un champ de pétrole [28].

En Suède, des expériences mettant en œuvre deux traceurs simultanément, tritium et $^{51}\text{Cr-EDTA}$, ont été relatées [9 bis].

D'autres applications pratiques des traceurs radioactifs à l'hydraulique et à l'hydrologie ont eu lieu en Suède [9], aux Etats-Unis [19] [20] [29], en Australie [11] [12], en Grande-Bretagne [10] [30], en Allemagne [31], mais sans rapports directs avec l'hydraulique souterraine; nous n'en citons en référence que quelques-unes qui permettront au lecteur intéressé de remonter aux autres.

Dans un domaine connexe qui est celui du charriage des sédiments, de nombreux travaux ont été effectués; nous renvoyons le lecteur à la revue générale du problème publié par Hours et Jaffry [32] en 1959. Signalons que la précision de 1 pour 1 000 des jauges de densité à rayons γ ne permet pas en général d'apprécier la teneur des eaux en sédiments en suspension.

V. — APPLICATIONS DU TRITIUM D'ORIGINE NATURELLE OU THERMONUCLÉAIRE

Le tritium est produit naturellement dans la haute atmosphère par action des rayons cosmiques sur l'azote, et partiellement peut-être par émission directe du soleil, à une cadence moyenne d'environ 0,12 atome par cm^2 par seconde [33]. Rapidement oxydé, il est entraîné sous forme d'eau tritiée par les précipitations. Antérieurement aux explosions thermonucléaires, la concentration du tritium dans les eaux de pluie variait de 3 à 20 U.T., et dans les océans de 0,2 à 2 U.T. [33] [34].

Une seconde source importante de tritium dans l'atmosphère résulte des explosions thermonucléaires; le tritium ainsi produit se répartit rapidement dans tout un hémisphère et la concentration dans les précipitations atteint des valeurs extrêmes dix à cent fois supérieures à la normale, pour y retomber avec une période (demi-vie) de l'ordre de trente-cinq jours [34]. La première série d'explosions ayant très sen-

siblement affecté le taux de tritium atmosphérique date de mars 1954 (opération Castle), les autres séries eurent lieu fin 1955 (en U.R.S.S.), en avril-mai 1956 (opération Redwing) et une dernière enfin en 1958 [35].

La différence entre les concentrations en tritium des eaux de pluie et des eaux souterraines permet d'attribuer à ces dernières un « âge apparent » [36] correspondant au temps nécessaire à la seule décroissance radioactive pour justifier cette différence. En fait, les eaux souterraines sont en général constituées par un mélange d'eaux d'origine et d'âge différents, ce qui rend l'exploitation de cette notion d'âge délicate et justifie l'épithète « apparent ». Les eaux souterraines peuvent être ainsi classées en eaux « anciennes » ayant des concentrations en tritium indécélables, c'est-à-dire âgées de plus de trente à cinquante ans; en eaux préthermonucléaires (antérieures à 1954) et en eaux où la

concentration supérieure au niveau préthermonucléaire indique des apports de tritium d'origine thermonucléaire (postérieures à 1954).

Cette notion d'âge permet d'obtenir des renseignements intéressants sur le volume des nappes et des réservoirs, la vitesse de circulation dans les nappes et le bilan hydraulique total, c'est-à-dire le temps de séjour et le débit des eaux souterraines pour le bassin d'un fleuve ou pour l'ensemble d'un continent.

Citons quelques exemples d'applications.

Von Buttlar [36] rapporte qu'une eau de moins de trois ans fut extraite d'un puits de pétrole où l'on pratiquait le « water flooding », preuve que cette eau provenait de l'eau d'injection. Le même auteur relate l'analyse de deux échantillons d'eau provenant des grottes de Carlsbad; leurs âges respectifs, moins de trois ans pour l'une, de trois à trente ans pour l'autre, prouvent leur origine récente, au moins partielle. Il relate enfin l'étude complète d'une nappe à partir d'une série de puits distribués sur une longueur de 12 kilomètres au Nouveau-Mexique.

Libby et ses collaborateurs [37] ont analysé l'eau de sources thermales de situations géographiques très variées et concluent que ces sources contiennent généralement de l'eau d'origine météorique récente. Certaines sources thermales cependant, comme celle de Lardarelle, en Italie,

n'ont révélé aucune concentration décelable de tritium.

Un dernier exemple soulignera la difficulté d'interprétation de ces mesures de concentration. Begeman et Libby [37], à partir de mesures consécutives à l'opération Castle, et sur la base d'un mélange rapide des eaux de pluie et des eaux souterraines, estimèrent à 7,7 mètres l'épaisseur moyenne de la nappe souterraine alimentant le Mississippi. Plus récemment, Eriksson [22], partant des mêmes données, mais d'hypothèses de circulation différentes, arrive au chiffre de 2 mètres seulement.

Nous n'avons cité que quelques applications à l'hydraulique souterraine, mais c'est dans l'étude du cycle hydrologique total à l'échelle mondiale que la méthode du tritium naturel révèle toutes ses possibilités.

Il est évident que cette méthode est d'emploi fort délicat et ne doit être maniée que par des hydrologistes avertis, en possession d'un nombre suffisant de données relatives à la zone étudiée. Il est par ailleurs certain que de trop fréquentes explosions rendraient inextricable le problème de l'interprétation des données ainsi recueillies.

Enfin, l'addition volontaire de tritium dans des zones limitées peut, dans une certaine mesure, y gêner l'application de cette méthode.

VI. — COMPARAISON DES TRACEURS RADIOACTIFS ET DES TRACEURS CLASSIQUES DE L'EAU

A l'avantage des traceurs radioactifs, nous noterons :

- a) Dosage *in situ* des émetteurs γ praticable dans des conditions physiques ou chimiques (température, salinité, présence de boues, etc.) très variées;
- b) Dosage en général plus sensible, permettant l'emploi de concentrations pondérales faibles, avec diminution consécutive des courants de densité;
- c) Circulation favorisée par la présence naturelle du traceur dans l'eau sans diminution consécutive de la sensibilité du dosage;
- d) Disparition de l'empoisonnement éventuel du terrain au bout de quelques périodes, avec possibilité de répéter les expériences sans interférences;
- e) Discrétion d'emploi.

Au passif des traceurs radioactifs, nous noterons, par contre :

- a) Horaire rigoureux dans l'emploi des traceurs à vie courte; difficultés consécutives de stockage;
- b) Difficultés éventuelles de transport dues au poids souvent élevé des containers pour les émetteurs γ durs (140 kg pour 1 curie de ^{82}Br , mais 10 kg pour 1 curie d'iode 131, et 1 kg pour 100 curies de tritium);
- c) Matériel de détection relativement coûteux (3 500 NF pour un scintillomètre portatif; 40 000 NF pour un spectromètre à scintillation liquide perfectionné);
- d) Coût élevé de certains traceurs (1 curie d'iode 131 = 2 200 NF, mais 1 curie de brome 82 = 80 NF et 1 curie de tritium = 10 NF);
- e) Complications (toujours surmontables) dues à la manipulation de fortes activités γ ;
- f) Contamination éventuelle des eaux de boisson.

VII. — AUTRES APPLICATIONS DE LA RADIOACTIVITÉ A L'HYDRAULIQUE SOUTERRAINE

La radioactivité naturelle du sol, ainsi que l'interaction des rayons γ et des neutrons avec les éléments constitutifs du sol, peuvent fournir diverses informations relatives à la densité, la porosité, l'humidité et la nature des terrains. Une revue rapide, mais complète, riche en références, des applications à l'étude des formations pétrolifères a été publiée par Caldwell [23]; les procédés décrits sont le plus souvent d'un intérêt immédiat pour l'hydraulique souterraine. Nous en présenterons un rapide aperçu.

A) Etude de la radioactivité naturelle.

Le profil radioactif γ d'un forage, renseigne sur la nature des formations rencontrées, l'épaisseur et l'étendue des couches. De faibles activités sont l'indice d'anhydrite, sel gemme, charbon, chaux, grès, dolomie; de fortes activités sont l'indice de schistes, granit et cendres volcaniques; de très fortes activités sont l'indice d'uranium et de potasse. Le profil γ naturel doit être le plus souvent complété par un profil γ - γ ou neutrons.

B) Mesures de densité par absorption ou diffusion des rayons γ (diagramme γ - γ)

Les jauges à absorption [38] permettent d'atteindre des précisions élevées (jusqu'à 1 pour 1 000) avec de bonnes définitions. La disposition géométrique source-détecteur se prête toutefois mieux à des mesures de surface qu'à des mesures en profondeur, bien qu'une disposition en U ait été adoptée pour la mesure de la densité des boues au fond d'un lac, et qu'une disposition linéaire ait été réalisée [23] dans une sonde pour la mesure des densités de fluides dans les forages de pétrole.

Une application particulière de l'absorption γ est le nivomètre enregistreur [39], ce qui mesure à 1 cm d'eau près l'équivalent-eau d'une couche de neige; les informations de cet appareil, placé en montagne dans des régions difficilement accessibles en hiver, sont retransmises par radio.

Les densimètres à diffusion de rayons γ [40] [41] [42] [43] se prêtent par contre très bien à une disposition linéaire dans une sonde qui peut être descendue dans un forage. La proportion des γ émis par la source et diffusés vers le détec-

teur est fonction de la densité du milieu [43]; le volume de terrain effectivement intéressé par la mesure a la forme d'un sphéroïde de 15 à 20 cm de rayon, mais des collimateurs permettent de limiter ce volume à une tranche plus étroite. La précision est de l'ordre de ± 30 g/dm³. Dans les appareils destinés à l'agronomie ou aux travaux publics, la sonde, de 2,5 à 3 cm de diamètre, est descendue dans un forage tubé en métal ou en plastique pratiqué à la tarière.

Il existe également des densimètres à rétrodiffusion γ pour mesures superficielles [40] [42]; ils affectent en général la forme d'un gros fer à repasser; en gros, 95 % de l'information qu'ils fournissent est due à une couche de 5 cm d'épaisseur, le reste étant dû aux 5 cm suivants.

Il est évident que les mesures de densité fournies par ces appareils peuvent être reliées à la porosité et à l'humidité des terrains.

Dans l'étude au laboratoire des mouvements de fluides dans des colonnes de verre ou d'acier remplies de sable (cas du water-flooding et du water drive), les traceurs radioactifs émetteurs γ ou les jauges de densité à absorption de rayons γ permettent à chaque niveau de mesurer les concentrations en eau, en huile ou en gaz [46] [47].

C) Techniques basées sur la diffusion et l'absorption des neutrons

1. JAUGES D'HUMIDITÉ A MODÉRATION DE NEUTRONS (diagramme neutron-neutron) :

Les neutrons rapides émis par une source sont ralentis par l'hydrogène de l'eau et comptés par un détecteur de neutrons thermiques [40] [41] [42]; selon la distance source-détecteur, le taux de comptage est fonction croissante ou décroissante de l'humidité totale du sol. Dans les modèles commerciaux portatifs, le volume effectif intéressé par la mesure est du même ordre que pour la jauge de densité, soit 15 à 20 cm de rayon; la mesure peut commencer à partir de 25-30 cm au-dessous du sol; la précision est de l'ordre de ± 15 g d'eau par litre de sol pour un comptage de une minute. La mesure se fait également dans un forage tubé de 2,5 à 3 cm de diamètre. Il existe également un modèle de surface sensible, lui aussi, essentiellement aux 5 premiers cm de terrain [40] [42].

Les sondes de densité et d'humidité, qui se complètent mutuellement, sont souvent livrées ensemble avec un même appareil de comptage (échelle portative en général).

La réponse des jauges de densité est plus ou moins affectée par la densité du terrain et la présence dans celui-ci d'autres éléments légers ou capteurs de neutrons (oxygène, silice, carbone, calcium, etc.).

La porosité peut être évidemment reliée au contenu en eau déterminé par la sonde [44].

Signalons enfin que des mesures plus fines d'humidité peuvent être obtenues par absorption d'un faisceau plat de neutrons thermiques (épaisseur 1 cm) à travers des carottes de terre [25].

2. DIAGRAMMES NEUTRON-GAMMA :

a) Analyse des γ de capture.

Les neutrons émis par la source sont finalement absorbés par les éléments constitutifs du sol, soit au cours de leur ralentissement, soit après thermalisation. Lors de la capture, il y a émission instantanée de rayons γ caractéristiques de l'élément absorbeur; l'analyse spectrale de ces γ de capture permet d'identifier et de doser l'élément capteur. Cette technique, d'application assez limitée avec les sources classiques de neutrons radium-béryllium ou polonium-béryllium, qui émettent de 5 à 20 millions de neutrons par seconde (*), a vu ses possibilités élargies par la mise au point de petits générateurs de neutrons de 14 MeV, produits par réaction (*d-t*) à une cadence de deux cents fois supérieure à celle des sources précédentes; ce petit générateur peut être descendu dans les forages. On peut ainsi doser *in situ* non seulement l'hydrogène de l'eau, mais une foule d'autres éléments.

b) Analyse des gammas retardés, ou analyse par activation.

En plus des γ de capture, l'élément capteur peut souvent devenir radioactif, c'est-à-dire émettre des γ retardés avec la période caractéristique du radioisotope formé. L'analyse spectrale des radio-éléments ainsi formés, ou ana-

lyse par activation, a d'innombrables possibilités; Leddicote [45] a publié un tableau des sensibilités de dosage ainsi obtenus, qui s'expriment souvent en centièmes ou millièmes de ppm. pour un flux de neutrons de l'ordre de 10^{12} n/cm² × s; un tel flux ne se rencontre que dans un réacteur atomique; avec le petit générateur signalé plus haut, les sensibilités sont très inférieures.

L'analyse par activation pourrait d'ailleurs être utilisée pour doser un traceur salin de l'eau; cette technique aurait l'avantage d'éviter l'injection d'un corps radioactif dans l'eau, mais nécessiterait des prélèvements d'échantillons qui seraient dosés dans un centre atomique; dépourvue des nombreux avantages propres aux traceurs radioactifs, elle doit être réservée à des cas particuliers.

D) Applications des explosions atomiques souterraines

Les applications hydrauliques des explosions atomiques ou thermonucléaires souterraines font aux U.S.A. l'objet du projet « ploughshare » (soc de charrue) dont l'état d'avancement a été exposé dans deux congrès « ploughshare » tenus ces dernières années. La première réalisation de ce projet consiste à creuser en Alaska un port artificiel au moyen de trois grosses bombes H, relié à la mer par un chenal creusé par deux bombes plus faibles. La création de lacs artificiels ou de canaux, le dédoublement du canal de Panama ont été étudiés. En hydraulique souterraine, on a évoqué la possibilité de briser des formations imperméables pour capter des nappes jusqu'ici inexploitable. On trouvera des informations détaillées dans les comptes rendus des deux congrès « ploughshare » dans les actes de la seconde conférence de Genève (1958) ainsi que dans l'ouvrage de C. Rougeron, *Les applications de l'exploitation thermonucléaire* (édition Berger-Levrault, Paris 1956).

VIII. — CONCLUSION

Cette revue générale des applications de la radioactivité à l'hydraulique souterraine nous amène aux constatations suivantes :

1° La recherche de traceurs émetteurs γ de période supérieure à celle du brome (trente-

six heures) et de l'iode (huit jours) n'a pas encore abouti à des résultats entièrement satisfaisants lorsqu'il y a percolation à travers des terrains absorbants;

2° La récente mise au point de méthodes de dosages sensibles et rapides de l'eau tritiée devrait permettre une extension rapide de l'emploi de ce traceur, voisin de l'idéal à de nombreux points de vue;

(*) Une source de 1 curie de radium-béryllium émet 10^7 neutrons/s dans tout l'espace, une source de polonium-béryllium $2,5 \cdot 10^6$.

3° Un outil entièrement nouveau, le tritium naturel, apporte une solution originale à de nombreux problèmes relatifs au cycle hydrologique;

4° Les traceurs radioactifs sont d'ores et déjà utilisés de façon courante dans l'étude des formations pétrolifères, tandis que leurs applications à l'hydraulique souterraine proprement dite ont été jusqu'ici peu nombreuses. Ceci tient sans doute en partie au dynamisme de l'industrie pétrolière, et également au fait que les risques de contamination d'eau potable sont faibles dans ce domaine particulier.

5° La même remarque s'impose dans le cas des applications basées sur l'absorption et la diffusion des rayons γ et des neutrons.

Les hydrologistes doivent prendre conscience de l'outil original que la radioactivité met à leur disposition.

Des procédés et des appareillages existent dès maintenant. De nouvelles méthodes peuvent être imaginées, de nouveaux appareils développés pour leur mise en œuvre, mais ceci dans la mesure seulement où une étroite collaboration s'établira entre les spécialistes de la radioactivité d'une part, les hydrauliciens et les hydrologistes de l'autre.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] HOURS (R.). — Les traceurs radioactifs en hydrologie. *La Houille Blanche*, mai 1955, p. 264; ou numéro spécial A/1955, p. 14-24; ou rapport C.E.A. n° 486.
- [2] HALÉVY (E.), NIR (A.) et alt. — Use of radioisotopes in studies of ground water flow. I. Laboratory and field experiments on the suitability of various tracers. — II. On the characteristics of tracer pulse shape. *Second U.N. Int. Conf. on the Peaceful Uses of Atomic Energy*, reports 15/P/1613, 15/P/1614, Genève, 1958.
- [3] HALÉVY (E.), NIR (A.). — Use of radioisotopes in studies of ground water flow. Water planning for Israël Ltd. Publication n° 32, Tel-Aviv, avril 1960 (38 pages).
- [4] KAUFMAN (W. J.), ORLOB (G. T.). — Measuring ground water movement with radioactive and chemical tracers. *J. Am. Water Works Assoc.* (48), 5, mai 1956, pp. 559-572.
- [5] WATKINS (J. W.) et alt. — Laboratory evaluations of radioactive water tracers. *Third Industrial Nuclear Technology Conference*, Chicago, sept. 1959.
- [6] WATKINS (J. W.) et alt. — Use of radioactive iodine as a tracer in water-flooding operations. *J. Petrol. Tech.*, 6, 117-124, sept. 1954.
- [7] WATKINS (J. W.) et alt. — Waterfloods benefit by radioactive tracer techniques. *The Mines Magazine*, 87-91, oct. 1957 or the *Petroleum Engineer*, sept. 1957.
- [8] WATKINS (J. W.) et alt. — Radioisotopes in petroleum industry. *First U.N. Int. Conf. on Peaceful Uses of Atomic Energy*, rapport P/161, Genève, 1955.
- [9] LJUNGGREN (K.) et alt. — Tracing of water flow by means of radioactive isotopes and scintillation counters. *Int. J. Applied Radiation and Isotopes*, 5, 3, mai 1959, pp. 204-212.
- [9 bis] KNUTTSON (G.), LJUNGGREN (K.). — Studies of ground water flow using radioactive isotopes. *Geologiska Föreningens Förhandl.*, 81, p. 405, 1959.
- [10] PUTMAN (J. L.) et alt. *Wat. Sanit. Engr. and Waste Treatment Journal*, sept.-oct. 1956.
- [11] ELLIS (W. R.) et alt. — The adsorption of radioactive iodine 131 on mud. *Australian Atomic Energy Commission*, AEEC/E7, Sydney, sept. 1958 (6 pages).
- [12] ELLIS (W. R.) et alt. — The use of radioactive tracer (iodine 131) in the investigation of a power station cooling pond. AEEC/E8, Sydney, sept. 1958 (41 pages).
- [13] SCHÖELLER (H.). — Recherches sur la zone aride (XII). Hydrologie des régions arides, progrès récent (126 pages). Chap. V: les différents traceurs, la circulation microscopique de l'eau dans les terrains, les traceurs radioactifs (pp. 84-115, 125-126). UNESCO, 1959.
- [14] LACY (W. J.), DE LAGUNA (W.). — Method for preparing radioactive cations for tracing ground water. *Science*, 124, p. 402, 31 août 1956.
- [15] VILLERMAUX (J.). — Etude de traceurs pour l'hydrologie. Rapport de stage. Centre d'Etudes nucléaires de Saclay, France, août 1957 (non publié).
- [16] HOURS (R.), KAUFMAN (W. J.). — Low-level tritium measurement with the liquid scintillation spectrometer. *Progress Report*, n° 1, 1^{er} octobre 1959. *Sanitary Eng. Research Lab., University of California*, Berkeley (50 pages).
- [16 bis] KAUFMAN (W. J.). — Tritium as a ground water tracer. *8th Annual Meeting of the California Association of Sanitarians*, Santa Monica, California, 1959.
- [17] URBAIN (P.), LAGRANGE (R.), HOURS (R.), GESLIN (M.). — Sur l'emploi des traceurs radioactifs sur le terrain en géologie et hydrogéologie. *Ann. Inst. Hydrol.*, 1954, 25, 76, pp. 7-26.
- [17 bis] DODERO (M.). — Sur l'emploi du bichromate de sodium dans la mesure du débit des cours d'eau par colorimétrie. *C.R. Acad. des Sc.*, 234, 1952, 1462-1464.

- [17 ter] DODERO (M.). — Modalités pour le titrage des solutions employées dans la méthode chimique pour la mesure des débits. Modalités d'utilisation du bichromate de sodium.
La Houille Blanche, 6, déc. 1953, 883-888.
- [18] Protection contre les radiations ionisantes.
Circulaire du 3 juin 1957 (*J.O.* du 11 juillet 1957).
Tiré à part n° 57/87 S.
- [19] HULL (D.E.), MACOMBER (M.). — Flow measurements by the total count method.
Second U.N. Conf. on Peaceful Uses of Atomic Energy, Genève, 1958, paper P/817.
- [20] HULL (D.E.). — The total count technique: a new principle in flow measurements.
Int. J. App. Rad. and Isotopes, déc. 1958. vol. 4, pp. 1-15.
- [21] MOSER (H.), NEUMAIER (F.), RAUERT (W.). — Application des isotopes radioactifs en hydrologie. II : Un procédé de recherche du débit des courants d'eaux souterraines (en allemand).
Atomkernenergie, 1956 (6), 2, 225-231.
- [22] ERIKSSON (E.). — The possible use of tritium for estimating ground water storage.
Tellus, vol. 10, n° 4, nov. 1958, 472-478.
- [23] CALDWELL (R.L.). — Using nuclear methods in oil-well logging.
Nucleonics (16), 12, décembre 1958, pp. 58-65.
- [24] TEPLIZ (A.J.), HASSEBROEK (W.E.). — Carnotite in squeeze cementing.
The Oil Weekly, 1945, oct. 29, pp. 41-46.
- [25] LÉVÊQUE (P.) et alt. — Quelques nouvelles applications des radioéléments en France.
Second U.N. Int. Conf. on Peaceful Uses of Atomic Energy, Genève, 1958, P/1231.
- [26] FOX (C.S.). — Using radioisotope to trace movement of underground water.
Municipal Utilities, 90, 30-32 (1952).
Voir aussi :
La Ingegneria, août 1951, pp. 305-307 (traduction n° 203 de l'E.D.F., Service des Etudes Hydrauliques).
- [27] KAUFMAN (W.J.). — Communication personnelle.
- [28] ALEKSEEV (F.A.) et alt. — Use of tritium in ground water as an indicator.
Sov. J. Atom. Energ. U.R.S.S., 1958, 4, 3, 396-399.
- [29] GOODMAN (E.I.). — *Indust. Eng. Chem.*, 50, 210 (1958).
- [30] TRUESDALE (G.A.). — The use of radioactive isotopes in tracing sewage flow.
Atomics G.B., nov. 1954, 304-312.
- [31] MONTENS (A.). — The use of radioactive isotopes for water flow and velocity measurements.
Radioisotopes conference, vol. 2, pp. 169-180, Butterworths, 1954.
- [32] HOURS (R.), JAFFRY (P.). — Applications des isotopes radioactifs à l'étude des mouvements des sédiments et des galets dans les cours d'eau et en mer.
La Houille Blanche, n° 3, mai-juin 1959 (30 pages) ou *Rapports C.E.A.*, n° 1269 et 1271.
- [33] KAUFMAN (S.), LIBBY (W.L.). — The natural distribution of tritium.
Physical Review (93), 6, 15 mars 1954, 1337-1344.
- [34] BROWN (R.M.), GRUMMIT (W.E.). — The determination of tritium in natural waters.
Canadian J. of Chem. (34), 1956, 221-226.
- [35] BEGEMAN (F.). — New measurement on the worldwide distribution of natural and artificially produced tritium.
Second U.N. Conf. on Peaceful Uses of Atomic Energy, Genève, 1958, P/1963.
- [36] VON BUTTLAR (H.), WENDT (I.). — Ground water studies in New-Mexico using tritium as a tracer.
Trans. Am. Geophys. Union (39), 4, août 1958, 660-668, ou *Second U.N. Conference*, Genève, 1958, P/1954.
- [37] BEGEMAN (F.), LIBBY (W.F.). — Continental water balance, ground water inventory and storage times, surface ocean mixing rates and world wide water circulation patterns from cosmic-ray and bomb tritium.
Geochim. and Cosmochim. Acta (12), 277-296, 1956.
- [38] HOMILIUS (J.), LORCH (S.). — Density determination on near surface layers by γ absorption.
Geophys. Prosp., V (1957), 449-468.
- [39] LETERRIER (G.). — Nivomètre enregistreur. Pluie, évaporation, filtrations et écoulement. 1954, 51-58.
Publié par *La Houille Blanche*.
- [40] BROCARD (M.-J.). — Application des isotopes radioactifs à la mesure de la densité et de la teneur en eau des matériaux et des sols.
Annales de l'Institut Tech. du Bât. et des T.P., mai 1955, n° 89, 428-450.
- [41] BELCHER (D.J.), CUYKENDALL (T.R.), SACK (H.S.). — The measurement of soil moisture and density by neutron and gamma scattering.
Civil Aeronautics Adm. Tech. Dev. Report, n° 127, Indianapolis, octobre 1950.
- [42] BELCHER (D.J.), CUYKENDALL (T.R.), SACK (H.S.). — Nuclear meters for measuring soil density and moisture in thin surface layers.
Civil Aeronautics Adm. Tech. Dev. Report, n° 161, Indianapolis, février 1952.
- [43] JAQUESSON (J.). — Application de la rétrodiffusion du rayonnement γ à la mesure de la densité des sols.
J. Phys. Radium, Supp. au n° 11 (17), nov. 1956, 176 A-180 A.
- [44] RUSSEL (J.H.), BISHOP (O.B.). — Quantitative evaluation of rock porosities by neutron-neutron method.
The Petroleum Engineer, avril 1954, pp. B-76, B-86.
- [45] LEDDICOTTE (G.W.) et alt. — The use of neutron activation analysis in analytical chemistry.
Second U.N. Conf. on Peaceful uses of Atomic Energy, Genève, 1958, Report 15/P/927.
- [46] CAMERON (J.F.). — Fluid density measurements in enclosed systems.
Int. Conf. on Radioisotopes in Scientific Research, UNESCO/NS/RIC/195, Paris, 1957.
- [47] HOURS (R.). — Mesure de la concentration en gaz d'une émulsion gaz-liquide par absorption de rayons γ .
La Houille Blanche, n° spécial B/1955, pp. 140-149, ou rapport C.E.A. n° 521.

FIN